

(19)



JAPANESE PATENT OFFICE

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11) Publication number: **06080766 A**

(43) Date of publication of application: **22 . 03 . 94**

(51) Int. Cl.

C08G 59/62
C08L 63/00
H01L 23/29
H01L 23/31

(21) Application number: **04235613**

(22) Date of filing: **03 . 09 . 92**

(71) Applicant: **MATSUSHITA ELECTRIC IND CO LTD**

(72) Inventor: **WAKAGI SHIGERU**

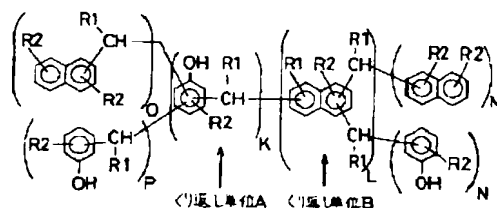
(54) EPOXY RESIN COMPOSITION FOR ELECTRONIC AND ELECTRIC APPLIANCES

(57) Abstract:

PURPOSE: To obtain the title compsn. which gives a cured article excellent in heat resistance, moisture resistance, etc., by compounding an epoxy resin with a specific polyphenol compd. as a curative.

CONSTITUTION: The compsn. is prepd. by compounding an epoxy resin with a curative comprising a polyphenol compd. having a naphthalene backbone represented by the formula (wherein R1 is H, 1-8C alkyl, allyl, or aryl; R2 is R1 or halogen provided at least one R2 is attached to one arom. ring; $0 < K \leq 25$; $0 < L \leq 25$; $0 < K + L \leq 50$; $0 \leq O \leq 1$; $0 \leq P \leq 1$; $1 \leq O + P \leq 2$; $0 \leq M \leq 2$; $0 \leq N \leq 2$; and $1 \leq M + N \leq 4$).

COPYRIGHT: (C)1994,JPO&Japio



(19)日本国特許庁(J P)

(12) 公開特許公報(A)

(11)特許出願公開番号

特開平6-80766

(43)公開日 平成6年(1994)3月22日

(51)Int.Cl.⁵

C 0 8 G 59/62

C 0 8 L 63/00

H 0 1 L 23/29

23/31

識別記号

N J F

N J S

片内整理番号

8416-4 J

8830-4 J

8617-4 M

F I

技術表示箇所

H 0 1 L 23/ 30

R

審査請求 未請求 請求項の数1(全 7 頁)

(21)出願番号

特願平4-235613

(22)出願日

平成4年(1992)9月3日

(71)出願人 000005821

松下電器産業株式会社

大阪府門真市大字門真1006番地

(72)発明者 若木 茂

大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器
産業株式会社内

(74)代理人 弁理士 前田 弘 (外2名)

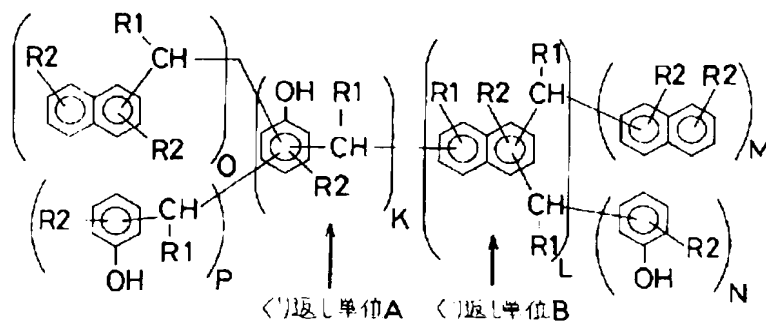
(54)【発明の名称】 電子・電気機器用エポキシ樹脂組成物

(57)【要約】

【目的】 信頼性の高い電子・電気用エポキシ樹脂組成物を提供する

【構成】 下記化学式

【化1】



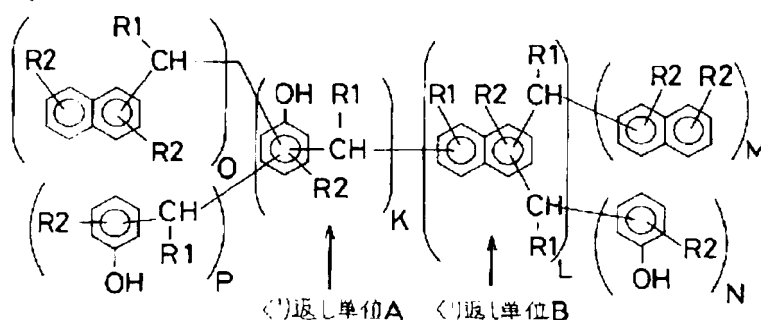
(式中、R1は、水素又は炭素の数が1～8のアルキル基、アリール基、アミノ基から選ばれた同一の基又は異なる基で、R2は、水素又は炭素の数が1～8のアルキル基、アリール基、アミノ基、ハロゲン原子から選ばれた同一の基又は異なる基でもって、同一の芳香族基に対するR2の置換数は1以上である)で示されるオキシレン

骨格を有するポリフェニール類を、エポキシ樹脂の硬化剤として含有するエポキシ樹脂組成物を構成する。オキシレン骨格の疎水性等を利用して吸湿量を低減し、剛直性を利用して溶融粘度を低減しながらフェニールの増量を可能とし、視覚的透明性を向上させることにより直接光透過率を低減する。

【特許請求の範囲】

【請求項1】 下記化学式

* 【化1】



(式中、R1は、水素又は炭素の数が1～8のアルキル基、アリール基、アリール基から選ばれた同一の基又は異なる基であり、R2は、水素又は炭素の数が1～8のアルキル基、アリール基、アリール基、ハロゲン原子から選ばれた同一の基又は異なる基であって、同一の芳香核に対するR2の置換数は1以上であり、K、L、M、N、O、Pは、 $0 < K \leq 2.5$ 、 $0 < L \leq 2.5$ 、 $0 < K+L \leq 5.0$ 、 $0 < O \leq 1$ 、 $0 < P \leq 1$ 、 $1 < O+P \leq 2$ 、 $0 < M \leq 2$ 、 $0 < N \leq 2$ 、 $1 \leq M+N \leq 4$ の範囲にある定数である)で示されるフェノール骨格を有するポリフェノール類を、ポロキシ樹脂の硬化剤として含有することを特徴とする電子・電気機器用ポロキシ樹脂組成物

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】本発明は電子・電気機器用ポロキシ樹脂組成物に係り、特に電子デバイス用の封止材料や積層基板用のメタリック材料などに要求される特性の改善対策に関する。

【0002】

【従来の技術】従来より、ポロキシ樹脂の硬化剤には酸無水物、アミン・酸ジアルキル、脂肪族イミン、芳香族アミンおよびポリアミン型フェノール樹脂等が用いられてきた。特に、半導体デバイス用の封止には、封止用途に要求される各種性能のバランスに優れたフェノールノボラック樹脂の硬化反応において、フェノールノボラック樹脂のフェノール性水酸基は、ポロキシ樹脂のポロキシ基に対し、図1に示す開環を伴う重付加反応を行い、3次元架橋構造をもつ硬化物が得られる。

【0003】このフェノールノボラック樹脂は酸性触媒の存在下にフェノールとホルムアルデヒドを付加縮合させることで合成される。また、これにはアルカリ触媒が存在下にフェノールに対するホルムアルデヒドのメチル化反応を先行させるという予備重合を行った後、酸性触媒の存在下に縮合を行うという二段重合が用いられることもある(SCR1156-82(1986.9.3)第81頁～82頁(1976年3月))。

【0004】ところで、フェノールノボラック樹脂の

平均分子量、分子量分布および分子構造に代表される特性は、樹脂骨格に組み込まれたフェノール核に対するメチレン基のモル比(以下「P」と略す)によって大きく影響される。Pが低い場合は、図2(a)～(e)に示すように、2核体を基本とする低分子の分子種が主成分である。すなわち、図2(a)は2核体の一般式、図2(b)は2,2',4,4'-ジヒドロキシアジフェニルメタン、図2(c)は3核体の一般式、図2(d)は4,4'-ジヒドロキシアジフェニルメタン、図2(e)は2,2',4,4'-ジヒドロキシアジフェニルメタンの構造をそれぞれ示す。

【0005】ここで、Pが大きくなると高分子成分が増大し、分子量分布は広くなっていく。フェノール核は官能性であるためフェノールノボラック樹脂の分子量分布は広くなるを避けないことは公知の事実である。これは、重合の進行に伴って、高分子量の分子種は幾何級数的に官能基数が増大する結果、分子量の大きい分子種ほど分子量の増大が速いためである。

【0006】一方、Pが一定値を越えると、ミクロゲルの発生、さらには樹脂全体のゲル化が進行する。ポロキシ樹脂の硬化剤として用いられるフェノールノボラック樹脂のPは、0.5から0.7前後である。ゲル化が発生しないようにフェノール核のメチル化率の適当な比率をコントロールして得られるフェノールノボラック樹脂は、1.0重量%前後またはそれ以上の2核体を含む。この分子量が1万を越える分子種が存在する。加えて、分子量分布が広い結果、数平均重合度は低い。溶融粘度が高いことがフェノールノボラック樹脂の欠点である。

【0007】すなわち、フェノールノボラック樹脂を硬化剤として使用する際には、強度を向上せよとする分子量を増大しなければならぬが、分子量を増大させるべく、溶融粘度が高くなり過ぎるという2律背反が存在する。

【0008】そこで、特開昭62-213410号公報に開示されるフェノールノボラック樹脂中の2核体含有量を低減ないし除去することにより、その限りにおいてフェノールノボラック樹脂の分子量の増大を抑制

たことから、溶融粘度の上昇をある程度抑制して、フェノール・ノボラック樹脂が抱える2律背反を緩和しようとするものは、本開の技術である。

【0009】

【発明が解決しようとする課題】をより、電子・電気機器用エポキシ樹脂組成物、特にその代表的用途である半導体パッケージに要求される機能については、近年、半導体パッケージの高集積化に伴うチップの大型化及びそれに相反するパッケージの小型化、さらに表面実装法の採用などにより、半導体パッケージに要求される性能もより高度になりつつある。したがって、上述のような分子量、溶融粘度、耐熱性等の2律背反に加え、下記のような信頼性についての課題がある。

【0010】まず、第一の課題はチップとパッケージの裸膜張率の差により生ずる応力の低減である。半導体パッケージが搭載されたシリコンチップの裸膜張率は2・5×10⁻⁶/℃であるに対し、これを封止するエポキシ樹脂材料の裸膜張率は最近の低応力タイプのものにおいても15・10⁻⁶/℃前後である。かかる裸膜張率の差があることから、環境温度の高温・低温間に変化する温度サイクルや内部発熱による温度サイクルが加わると、チップとパッケージの間に引張または圧縮応力が作用する。この結果、チップとパッケージの破壊、或いは、破壊に至らないまでも素子上に加わる応力がリーク効果を発現し、デバイス特性の変動といった大きな問題が生ずる。さらに、チップ側に限らず、パッケージにおいてもチップと樹脂間剥離、チップとエポキシ間やチップとエポキシとエポキシ間との剥離といった欠陥が発生する。そして、このような剥離が発生すると、剥離界面を介して外界雰囲気の水分子が侵入し、半導体パッケージの信頼性の悪化を招く虞れがある。

【0011】また、半導体パッケージにおける第二の課題として、基板への表面実装法の採用によるパッケージに加わる熱衝撃の緩和が求められる。

【0012】すなわち、封止材料であるエポキシ樹脂組成物が硬化する際、1分子に対して、エポキシ基1個に対し2級アルコール性水酸基が1個生成する。樹脂材料には種々の分子構造を持つものが存在するので、ある程度の吸湿性を帯びることは避けられないが、エポキシ樹脂硬化物の場合、この2級アルコール性水酸基の存在が吸湿量をさらに増加させている。そして、表面実装時には、半導体パッケージを高温のハンダ浴に浸漬され*

※る際に、樹脂中に含有された水分が、樹脂材料内部で急激に蒸発・膨張し、樹脂材料内部に大きな引張応力を発生させ、ついにはパッケージクラックの発生や、チップと表面の損傷を生ぜしめる虞れがある。かかることから、フェノール・ノボラック樹脂を用いる限り、チップと被覆層との界面水酸基の低減には限界があり、吸湿量の低下を図ることは困難である。

【0013】一方、半導体封止用エポキシ・ノボラック樹脂・ノボラック樹脂に用いれば、エポキシの増量は、硬化物の裸膜張率と吸湿量を低下させる効果がある。しかし、前述したように半導体封止用途に用いられるフェノール・ノボラック樹脂は、広い分子量分布を持つため故平均分子量が低く、その溶融粘度は高い。従って、単純にエポキシ量を増大させると、エポキシ樹脂組成物の溶融粘度が益を増大し、半導体封止用途に適する範囲を越えてしまう虞れがある。具体的には、封止時にワイヤ流れや、半導体パッケージ表面の損傷を生じさせるという問題がある。

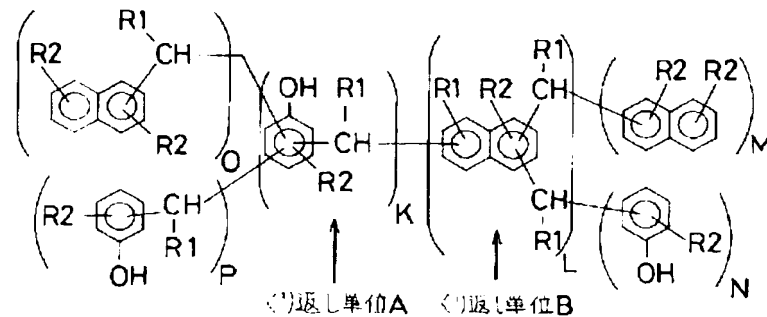
【0014】そこで、上記従来の公報によるものでは、上述のような2律背反を回避する上、フェノール・ノボラック樹脂中の2律成分をほとんど実質的に存在しない位置低減するものであるが、技術的な解決策とはなっていない。すなわち、故平均分子量X₁nを低く抑えようと、溶融粘度の上昇を抑えようものの耐熱性が劣化し、故平均分子量を高くすると、耐熱性は維持し得るものの溶融粘度が上昇するという結果となっている（同公報中の表1参照）。さらに、裸膜張率の適合性や吸湿性の低減については、ほとんど考慮されていない。

【0015】本発明は、フェノール・ノボラック樹脂を硬化剤に用いる従来のエポキシ樹脂組成物では、温度サイクルにより生ずる問題や、表面実装時に生ずる熱衝撃の問題を解決できないことに鑑み、吸湿量が低く、かつ低分子量で耐熱性を保持しながら、裸膜張率の半導体チップとの適合をも可能とする材料を硬化物として含有するエポキシ樹脂組成物を構成することにより、上述のような問題を解決し、もって、信頼性の向上を図ることを要する。

【0016】

【課題を解決するための手段】上記目的を達成するため本発明の講じた手段は、電子・電気機器用エポキシ樹脂組成物として、下記化学式

【化2】



(式中、R1は、水素又は炭素の数が1～8のアシル基、アリル基、アリール基から選ばれた同一基又は異なる基であり、R2は、水素又は炭素の数が1～8のアシル基、アリル基、アリール基、ハロゲン原子から選ばれた同一の基又は異なる基であつて、同一の芳香族に対するR2の置換数は1以上であり、K、L、M、N、O、Pは、 $0 \leq K \leq 2.5$ 、 $0 \leq L \leq 2.5$ 、 $0 \leq K+L \leq 5.0$ 、 $0 \leq O \leq 1$ 、 $0 \leq P \leq 1$ 、 $1 \leq O+P \leq 2$ 、 $0 \leq M \leq 2$ 、 $0 \leq N \leq 2$ 、 $1 \leq M+N \leq 4$ の範囲にある定数である)で示されるサフタレン骨格を有するポリフェノール類を、エポキシ樹脂の硬化剤として含有する構成としたものである。

【0017】ただし、繰り返し単位Aと繰り返し単位Bの配列は、アランダム配列、ブロック配列、交互配列等が考えられるが、これらに限定されるものではない。

【0018】分子構造は、線状構造であっても、分岐構造であってもよい。

【0019】サフタレン骨格を結ばる(R1)CH基は、同一の芳香環に結合していてもよいし、隣り合った芳香環に結合していてもよい。

【0020】

【作用】以上の構成により、本発明では、サフタレン骨格を有するポリフェノール類がエポキシ樹脂の硬化剤に用いられるので、サフタレン骨格の疎水性と、エポキシ環の開環により生成する2級水酸基含有量の低減とによって、硬化物の吸湿量が低減される。

【0021】また、剛直なサフタレン骨格の導入により、硬化剤の分子量を低くおさえても耐熱性が保たれるので、エポキシ樹脂組成物のガラス転移温度の向上と、含有量の増加が可能になる。すなわち、半導体パッケージ封止材料に应用した場合、硬化剤の分子量を低く抑制しながらガラス転移温度を増大することにより、溶融粘*

*度の増大を招くことなく、半導体パッケージの線膨張率をシリコンチップのそれに近付けることが可能になる。したがって、シリコンチップの割れ、基板表面の損傷やパッケージクラックの防止作用が顕著となり、半導体の信頼性が向上することになる。

【0022】

【実施例】以下、本発明の実施例について説明する。

【0023】本発明の効果を確認するため、下記の方法で実施例のサンプルを作成した。なお、他の実施例や比較例も下記と同様の方法で試作・評価を行った。

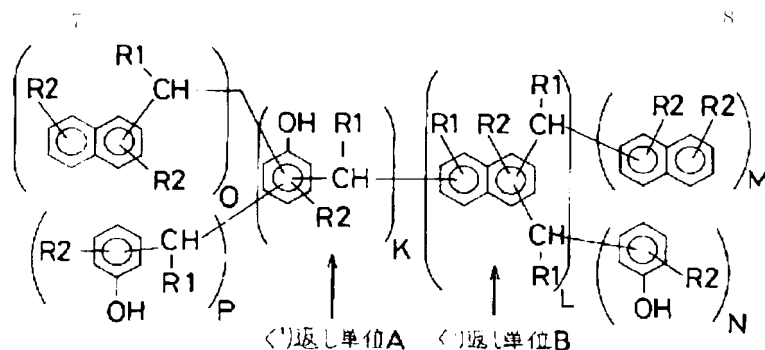
【0024】(1) エポキシ樹脂の硬化剤

本発明にかかるエポキシ樹脂の硬化剤であるサフタレン骨格を有するポリフェノールは、以下に示す方法で合成した。温度計、冷却ジャケット、滴下漏斗、攪拌器、および8mmのホースを取りつけたシリコン製のセパラブルフラスコに、サフタレン6.40g、メチルイソブチラケト2.00g、およびヒュウ酸2.0gを仕込み、温度80℃に保ちつつサフタレンを溶解する。温度を80℃に保持しながら濃度37重量%のホルマリン水溶液32.4gを1時間かけて滴下する。滴下終了後、還流温度で8時間反応させる。その後、セパクレール5.40gを50℃に保温しつつ1時間かけて反応溶液に滴下し、還流温度でさらに8時間反応させる。反応終了後、未反応のホルマリンを常沸蒸留により除去し、さらに減圧下にて180℃の温度でメチルイソブチラケトと、未反応のサフタレンおよびセパクレールを溜去し、淡黄色透明のサフタレン骨格を有するポリフェノールを得た。

【0025】このポリフェノールの構造は、一般的に下記化学式で表される。

【0026】

【化3】



ただし、式中、R1は、水素又は炭素の数が1～8のアルキル基、アリル基、アリール基から選ばれた同一の基又は異なる基であり、R2は、水素又は炭素の数が1～8のアルキル基、アリル基、アリール基、ハロゲン原子から選ばれた同一の基又は異なる基であり、同一の芳香核に対するR2の置換数は1以上であり、K、L、M、N、O、Pは、 $0 < K \leq 25$ 、 $0 < L \leq 25$ 、 $0 < K+L \leq 50$ 、 $0 \leq O \leq 1$ 、 $0 \leq P \leq 1$ 、 $1 \leq O+P \leq 2$ 、 $0 \leq M \leq 2$ 、 $0 \leq N \leq 2$ 、 $1 \leq M+N \leq 4$ の範囲にある定数である。

【0027】また、繰り返し単位Aと繰り返し単位Bの配列は、ランダム配列、ブロック配列、交互配列等が考えられるが、これらに限定されるものではない。

【0028】分子構造は、線状構造であっても、分岐構造であってもよい。

【0029】ナフテン骨格を結ぶ(R1)CH-基は、同一の芳香環に結合していてもよいし、隣り合った芳香環に結合していてもよい。

【0030】次に、比較例に用いたフェニルメチルメタクリレート樹脂は以下に示す方法で合成した。温度計、冷却管、滴下漏斗、攪拌器、および真空ポンプを取りつけた2リットルのセバツガラスフラスコに、フェニルメチルメタクリレート200g、および酢酸3gを仕込み、温度80℃に保ちつつフェニルメチルメタクリレートと酢酸を溶解する。温度を80℃に保持しながら濃度37重量%のホルマリン水溶液48.6gを1時間かけて滴下する。滴下終了後、還流温度で12時間反応させる。反応終了後、未反応のホルマリンを煮沸蒸留により除去し、さらに減圧下にて180℃の温度でメチルイソブチルケトンで未反応のホルマリンを除去し、無色透明のフェニルメチルメタクリレート樹脂を得た。

【0031】(2) 硬化

エポキシ樹脂としてフェニルメチルメタクリレート型エポキシ樹脂(住友化学株式会社製「E.S.C.N.」195X

*1.)、硬化剤として前述の方法で合成した上記化学式で表されるナフテン骨格を有するポリフェニール(実施例)、またはフェニルメチルメタクリレート樹脂(比較例)を用い、次の方法で両者を熱硬化させて硬化物を得た。

【0032】後述の表1に示す組成でシリカ粉末、エポキシ樹脂、硬化剤および硬化促進剤としてトリフェニルホスフィンをミルで微粉碎しつつドライブレンドして、粉末状の配合物を得た。この配合物を温度120℃にて、連続ペースターで加熱混練し、混練後ミルで微粉碎した。得られた粉末状の熱硬化性樹脂組成物を錠剤成形器で打錠(タブレット)にした。このタブレットを、全型温度180℃、キックタイム90秒で、低圧プレス機で成形(17.5℃で7時間ホールド)を行い、成形物を得た。

【0033】(3) 熱硬化性樹脂組成物の溶融粘度測定
溶融粘度は、高化式フローテスターを用い、以下に記述する方法で測定した。粉末状の熱硬化性樹脂組成物2gを天秤で精秤し、錠剤成形器で直径10、3mmのタブレットに打錠する。このタブレットを、ペースター温度17.5℃、タブレット寸法1mmφ×1.0mm、荷重10kgの条件にて測定を行った。溶融粘度は、フローカーブの最大勾配から算出した。

【0034】(4) 成形物の線膨張率測定
ガラス転移点以下の、成形物の線膨張率(以下α₁と略す)は、TMA法により測定した。

【0035】(5) 成形物の吸湿量測定
成形物から、長さ15mm、幅7mm、厚さ3mmの試験片を切り出し、吸湿量を測定する。試験片は、温度85℃、相対湿度85%の環境試験装置内で168時間吸湿を行い、吸湿前後の重量増加率より吸湿量を算出した。なお、試験片は、吸湿前に、125℃のオーブンで15時間排湿処理を行った。

【0036】

【表1】

実験番号	実施例1	実施例2	実施例3	比較例1	比較例2
エポキシ樹脂 (重量部)	197	197	197	197	197
フェノール ノヴォラック (重量部)	—	—	—	103	103
ナフタレン骨格 ポリフェノール (重量部)	156	156	156	—	—
シリカ粉末 (重量部)	1444	1777	2456	711	1228
トリフェニール ホスフィン (重量部)	8	11	14	5	7
シリカ含有量 (重量%)	80	83	87	70	80
溶融粘度 (poise)	280	340	450	360	1680
線膨張率 α_1 ($\times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$)	12	9	8	22	15
吸湿量 (ppm)	1800	1520	1220	3300	2750

上記表1から明らかなように、線膨張率については、本発明の上記実施例ででは、シリカ粉末の充填量が多い場合（実施例3）であっても、やや少ない場合（実施例2）であっても、線膨張率が 10×10^{-6} 以下である。これは従来のものでは到達しえなかった値である。それに対し、フェノールノヴォラック樹脂を硬化剤に用いる従来のエポキシ樹脂系コンパウンド（比較例1及び2）では、線膨張率が $10 \times 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ 以上となっている。この点に付いては、シリカ含有量を増加させることにより、線膨張率を低減することが可能かもしれないが、そうすると、溶融粘度が 1500poise を越え、半導体・バスの封止用には使用することができない。

【0037】また、溶融粘度については、実施例1～3

では、いずれも溶融粘度が 500poise 以下で、低圧トランスファー成形に要求される上限をクリアしており、十分に実用に供することができる。ただし、シリカ粉末の添加量を少なくすると（実施例1）、溶融粘度は低下するが、線膨張率が 10×10^{-6} 以上となるため、シリカ添加量が多い目が望ましい。一方、比較例2では、上述のように、溶融粘度が 1500poise 以上と高いので問題があり、シリカの充填量が少ない比較例1では、溶融粘度は 450poise と低いが、線膨張率が 20×10^{-6} を越え、信頼性が悪化する。

【0038】さらに、吸湿量については、実施例1～3では、いずれも $1200 \sim 1500\text{ppm}$ 程度と 2000ppm よりも低い。これに対し、比較例1及び2のフェノール

スグオラック樹脂を硬化剤として用いる場合、3000ppm前後の水分を含有し、十分な信頼性を有しないことがわかった。

【0049】したがって、本発明の構成によれば、エポキシ樹脂組成物では、吸湿量つまり吸水量が低下する。これは、2つの要因によるものと考えられる。すなわち、サフタレン骨格の疎水性がフェノール基のそれよりも大きいことと、エポキシ基の開環により生成される二級アルコール性水酸基含有量の低減効果によるものである。

【0040】また、サフタレン骨格はフェノール基よりも剛直性を有することから、分子量を小さくしても耐熱性を高く維持することが可能である。したがって、フェノールスグオラック樹脂を硬化材として用いる場合のように、分子量を低下させると耐熱性が悪化するという問題がなく、分子量を小さくして、溶融粘度を低く抑制することが可能である。また、そのことから、溶融粘度を低く維持しながら、エポキシモノレジン・グコン・ハウンドのフェノール（上記実施例ではシリカ）の含有量を増大させることかでき、このフェノール含有量の増大によって、半導体パッケージにおけるエポキシ樹脂とシリコンチップとの線膨張率差の低減が可能になり、従来、耐熱性を維持しようとするに到達しえなかった 10×10^{-3} 以下という低い線膨張率を実現することができるのである。

【0041】上述のように、本発明では、分子量を減少*

させ、溶融粘度を抑制しながら強度を維持する点で、従来のフェノールスグオラック樹脂を硬化材として用いる場合に付加する2律背反から開放される。すなわち、吸湿量の低減とシリコンチップに対する線膨張率の適合度の向上とによって、シリコンチップの割れ、パキス表面の損傷やバンプ・ブリックを有効に防止することができる。

【0042】

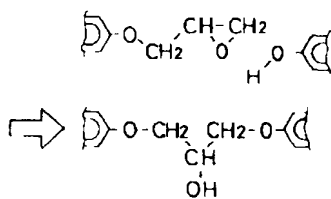
【発明の効果】以上説明したように、本発明の電子・電気機器用エポキシ樹脂組成物によれば、上記化学式で示されるサフタレン骨格を有するフェノールモノレジン類が、エポキシ樹脂の硬化剤として含有する構成としたので、サフタレン骨格の疎水性とエポキシ環の開環により生成される二級アルコール性水酸基含有量の低減とによって、硬化物の吸湿量を低下させることができるとともに、剛直なサフタレン骨格の導入による耐熱性の向上により、半導体パッケージ封止剤に応用した場合、フェノール含有量を増大させても、溶融粘度の増大を招くことなく、半導体パッケージの線膨張率をシリコンチップ等の線膨張率に近付けることができ、よって、電子・電気機器の信頼性の向上を図ることができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】エポキシ基とフェノール性水酸基との重付加反応の一部を示す図である。

【図2】フェノールスグオラック樹脂に含まれる低分子成分の例を示す図である。

【図1】



【図2】

